



不純物置換効果から見た鉄系超伝導体FeSeとBaFe₂As₂における電子相図

著者	浦田 隆広
号	70
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理博第2952号
URL	http://hdl.handle.net/10097/64228

論文内容要旨

氏 名	浦田 隆広	提出年	平成 27 年
学位論文の 題 目	不純物置換効果から見た鉄系超伝導体 FeSe と BaFe ₂ As ₂ における電子相図		

論文目次

第1章	序論
	1.1 はじめに
	1.2 鉄系超伝導体概観
	1.3 FeSe の諸物性
	1.4 BaFe ₂ As ₂ の諸物性
	1.5 研究の目的
	1.6 本論文の構成
第2章	単結晶育成及び評価
	2.1 FeSe 系
	2.2 BaFe ₂ As ₂ 系
	2.3 本章のまとめ
第3章	電子相図 : Fe _{1-x} Co _x Se 及び FeSe _{1-y} S _y
	3.1 電気抵抗の温度依存性
	3.2 磁場中輸送特性
	3.3 電子相図
	3.4 電子相図に関する考察
	3.5 本章のまとめ
第4章	FeSe における超伝導ギャップ構造
	4.1 不純物置換効果と超伝導ギャップ
	4.2 残留抵抗
	4.3 FeSe のギャップ構造及び超伝導発現機構に関する考察
	4.4 本章のまとめ
第5章	Ba(Fe _{1-x} Mn _x) ₂ As ₂ における磁場中輸送特性
	5.1 Hall 抵抗
	5.2 マルチキャリアフィット
	5.3 高移動度ホールキャリアに関する考察
	5.4 本章のまとめ
第6章	総括
付録 A	電気輸送特性

付録 B 超伝導転移温度抑制の解析についての補足

参考文献

謝辞

論文要旨

鉄系超伝導体は、銅酸化物高温超伝導体とは異なり、鉄の $3d$ 軌道に起因するマルチバンド構造を持つ。そのため、鉄系超伝導体はスピンと軌道の自由度が折り重なった、非常に多彩で複雑な物性を示す。この物質系では、制御パラメーターとしての不純物置換によって劇的に物性が変化することを利用し、そこから超伝導機構などの解明を目指す試みが盛んに行われている。本研究では軌道の自由度が関係する重要な例である、構造相転移/軌道秩序、超伝導及びディラックコーン状態に着目し、不純物置換効果から電子相図の研究を FeSe 及び BaFe_2As_2 を対象として行った。

FeSe は最もシンプルな構造を有す鉄系超伝導体である。その他の鉄系超伝導体とは異なり、低温で反強磁性を示さずに構造相転移を発現するなど、非常に興味深い性質を持つ。しかし、近年に至るまで単結晶育成が成されなかったこともあり、その物性は未解明な点が多い。本研究では、元素置換した FeSe 単結晶、 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Se}$ 及び $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ を育成し、電子輸送特性や磁化率などの系統的測定から電子相図を提案した。

$\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Se}$ について、Hall 測定などから電子ドーピング系となることを明らかにし、バンド間のネスティングの低下により非常に低濃度領域で構造相転移/軌道秩序と超伝導が消失することを見出した。これより、バンド間ネスティングという鉄系超伝導体全体で一般的に重要とされる電子状態が FeSe の電子相図においても重要であることが示唆される。一方、電荷をドーピングせず、化学圧力系であると考えられる $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ については、構造相転移/軌道秩序の抑制に伴い超伝導転移温度の上昇を観測した。

これら電子相図上で量子揺らぎの影響を議論するために、電気抵抗の温度べきの解析を行った。 FeSe は反強磁性秩序を持たないことから、軌道秩序の量子臨界現象を観測できる可能性がある。解析の結果、低温での電気抵抗のべきは構造相転移/軌道秩序の消失する点近傍でおおよそ 1 から 2 に推移していくことが分かった。この非 Fermi 液体的なものから Fermi 液体的振る舞いへの変化は量子臨界点近傍の現象として理解できるものである。その他プローブを用いたより詳細な検証は今後の課題である。

$\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Se}$ について、残留抵抗に対する超伝導転移温度の抑制を解析することで、 FeSe の超伝導機構に対する知見を得た。鉄系超伝導体の超伝導発現機構は、スピン揺らぎを媒介とするギャップに符号反転を伴う s_{\pm} -波と、軌道揺らぎが媒介する符号反転の無い s_{++} -波機構が有力な候補として考えられている。本研究からは、 FeSe においては軌道揺らぎ媒介の s_{++} -波機構の寄与が存在する可能性が明らかになった。この解析には FeSe の現実的なマルチバンド構造を取り入れた理論モデルを仮定しており、従来の解析手法と比べて高い妥当性を持っていると考えられる。 $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ については残留抵抗と超伝導転移温度の間に明確な相関は無く、こちらからも不純物散乱に対して強い s_{++} -波機構が寄与していると考えられることができる。

続いて、本研究では BaFe_2As_2 系に着目した。こちらは純良な単結晶育成が比較的容易であることから、広く研究が行われてきた系であり、より詳細な物性探索の時期にあると言える。 Dirac cone はグラフェンやトポロジカル絶縁体でよく知られている電子状態であるが、 BaFe_2As_2 においても軌道縮退によってこれが生じると考えられている。

本研究では、特に $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2\text{As}_2$ に着目した。この系は一見ホールドープとなるにも関わらず、超伝導を生じないことが知られており、その原因が盛んに議論されてきた。この非超伝導性と合わせて、Dirac cone に対する不純物置換効果を明らかにするために、電気伝導度テンソルを測定し、詳細な解析を行った。その結果、Mn 置換によっては多数キャリアが補償し合う半金属的な描像は変化しないが、Dirac cone の形状変化として理解できる振る舞いが明らかになった。以上を通して、Mn 置換系における輸送特性から見た電子状態に関する新たな知見が得られ、軌道縮退によって生じる Dirac cone 制御の可能性を示したといえる。

論文審査の結果の要旨

鉄系超伝導体は、銅酸化物系超伝導体の次に位置する高温の超伝導臨界温度を有する物質であり、電子相関と d 元素多バンド系物質である事を特徴として、近年活発に研究が進められている。本研究は、その基本母物質である 122 系 BaFe_2As_2 に対して Ba を Mn で置換した単結晶物質の電子状態ならびに 11 系物質である FeSe を Co および S で置換した $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Se}$ および $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ を対象として、鉄系超伝導体の電子相図を完成させ、超伝導機構を不純物効果の観点から研究した。

鉄系超伝導体では、半金属である母物質 122 系 BaFe_2As_2 において Fe 元素を Co および Ni で置換する事により電子系超伝導体になる事が知られている。しかし、Mn や Cr を置換した系ではホール系超伝導にならない理由が不明であった。本研究は、Mn を置換した $\text{Ba}(\text{Fe,Mn})_2\text{As}_2$ の良質な単結晶をセルフフラックス法により合成して研究を進めた。その結果、磁場中の電気輸送実験によりホールキャリアは注入されるが、局在した状態になる事を示した。また、電気輸送において観測されるホール効果の異常性は、Mn 置換に付随してディラック電子状態が発現するためである事を示した。

一方、鉄系超伝導体の超伝導発現機構に関しては、反強磁性相互作用における揺らぎ (S^{+-}) と軌道揺らぎにおける揺らぎ (S^{++}) のどちらが重要であるかに関する議論があった。本研究では、この問題を軌道内散乱と軌道間散乱の基礎的問題としてとらえて、基本構造である 11 系 FeSe 物質に対して詳細に研究した。Co および S を置換した $(\text{Fe,Co})\text{Se}$ および $\text{Fe}(\text{Se,S})$ の良質単結晶を、液相気相成長法を適用する事により合成して、不純物散乱効果から本問題に関して研究した。その結果、実験で観測された不純物効果が s^{+-} 機構に相当する理論に比べて著しく大きいことから、超伝導発現機構には S^{++} 機構が重要である事を示した。

本論文は、鉄系超伝導におけるホールドープ系および電子ドープ系における超伝導発現機構に関して、高質単結晶を育成して、磁場中の電子輸送の観点から電子相図を詳細に研究したものである。この成果は、申請者が高度の学識と自立して研究する能力があることを示すと判定される。よって、浦田隆広氏提出の博士論文は、博士（理学）の学位論文として合格と認める。